### PCT

## ORGANISATION MONDIALE DE LA PROPRIETE INTELLECTUELLE Bureau international



## DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIEE EN VERTU DU TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS (PCT)

(51) Classification internationale des brevets <sup>6</sup>:

C10L 10/04, 1/10

A1

(43) Date de publication internationale: 29 août 1996 (29.08.96)

(21) Numéro de la demande internationale: PCT/FR96/00273

(22) Date de dépôt international: 21 février 1996 (21.02.96)

(30) Données relatives à la priorité: 95/02158 24 février 1995 (24.02.95) FR

(71) Déposant (pour tous les Etats désignés sauf US): RHONE-POULENC CHIMIE [FR/FR]; 25, quai Paul-Doumer, F-92408 Courbevoie Cédex (FR).

(72) Inventeur; et

(75) Inventeur/Déposant (US seulement): LEMAIRE, Jacques [FR/FR]; 7, rue Ambroise-Paré, F-95520 Osny (FR).

(74) Mandataire: RICALENS, François; Rhône-Poulenc Chimie, Direction de la Propriété Industrielle, 25, quai Paul-Dourner, F-92408 Courbevoie Cédex (FR). (81) Etats désignés: AM, AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, EE, FI, GE, HU, IS, JP, KG, KP, KR, KZ, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TJ, TM, TT, UA, US, UZ, VN, brevet ARIPO (KE, LS, MW, SD, SZ, UG), brevet européen (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Publiée

Avec rapport de recherche internationale. Avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si de telles modifications sont reçues.

(54) Title: USE OF A CERIUM COMPOUND FOR PROTECTING INTERNAL COMBUSTION ENGINES

(54) Titre: UTILISATION D'UN COMPOSE DE CERIUM POUR LA PROTECTION DES MOTEURS A COMBUSTION INTERNE

### (57) Abstract

A method for protecting internal combustion engines using a compound selected for its solubility or pseudo-solubility in liquid hydrocarbons, and added to the internal combustion engine fuel supply in a sufficient concentration to form a solution, sol, suspension or emulsion of a cerium compound, in such a way that the concentration of cerium in said fuel is of at least 5 and preferably at least 10 ppm (by weight). The method is useful for controlling corrosion.

#### (57) Abrégé

La présente invention a pour objet un procédé de protection des moteurs à combustion interne. Lequel composé est choisi de manière qu'il soit soluble ou pseudo-soluble dans les hydrocarbures liquides et introduit dans le carburant alimentant le moteur à combustion interne à une concentration de manière à former une solution, un sol, une suspension ou une émulsion d'un composé du cérium et ce à une concentration telle que le cérium soit présent dans ledit carburant à une concentration au moins égale à 5 de préférence à 10 P.P.M. (en masse). Application à la lutte anticorrosion.

pagi 2

### UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION

Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publiant des demandes internationales en vertu du PCT.

Amérie Auriche	GB			
		Roysume-Uni	MW	Majawi Mexique
	GE	Géorgie		•
Australie	GN	Guinée	NE	Niger
Barbade				Pays-Bas
Belgique				Norvège
Burkina Faso	IE	Iriande ·		Nouvelle-Zélande
Bulgarie	IT	Italie		Pologue
Bénin	JP	Japon	PT	Portugal
Bresil	KE	Kenya	RO	Roumanie
Bélarus	KG	Kirghizistan	RU	Fédération de Russie
Canada	KP	République populaire démocratique	SD	Soudan
République centrafricaine		de Corée	SE	Suède
• •	KR	République de Corée	SG	Singspour
Suisse	K2	Kazakhstan	Sŧ	Slovénie
Côte d'Ivoire	u	Liechtenstein	SK	Slovaquie
Сатисточи	LK	Sri Lanks	SN	Statgal
Chine	LR	Libéria	SZ	Swaziland
Tchécoslovaquie	LT	Lituanie	TD	Tchad
•	LU	Luxembourg	TG	Togo
	LV	Lettonie	TJ	Tadjikisun
Danemark	MC	Monaco	11	Trinité-et-Tobago
Estonie	MD	République de Moldova	UA	Ukraine
Espagne	MG	Madagascar	UG	Ouganda
Finlande	MIL	Mali	US	Etats-Unis d'Amérique
Prence	MN	Mongolie	UZ	Ouzbékistan
	MR	Mauritanic	VN	Vict Nam
	Barbade Belgique Burkina Faso Bulgarie Bénim Brésil Bélarus Canada République centrafricaine Congo Suisse Côte d'Ivoire Cameroun Chine Tchécoslovaquie République tchèque Altzmagne Danemark Estonie Estonie Espagne	Barbade GR Belgique HU Burkina Faso IE Bulgarie IT Bénim JP Brésil KE Bélarus KG Canada KP République centrafricaine Congo KR Suisse KZ Côte d'Ivoire LJ Cameroua LK Chine LR Tchécoslovaquie LT République trèdque Allzenagne LV Danemark MC Estonie MD Espagne MG Finlande ML France MN	Barbade GR Grèce Belgique HU Hongrie Burkha Faso IE Irlande Bulgarie IT halie Bénim JP Japon Brésil KE Kenya Bélarus KG Kirghtzistan Canada KP République populaire démocratique de Corée Congo KR République populaire démocratique de Corée Congo KR République de Corée Suisse K2 Kazakhstan Côte d'Ivoire LJ Liechtenstein Cameroum LK Sri Lanta Chine LR Libéris Tchécoslovaquie LT Linumie République trhèque LU Lozembourg Altemagne LV Lestonle Danemark MC Mounco Estonie MD République de Moldova Espagne MG Madaguscar Finitande ML Mali France MN Mongofie	Barbade GR Grèce NL Belgique HIU Hongrie NO Burkhra Faso IE Irlande NZ Bulgarie IT halie PL Bénim JP Japon PT Brésil KE Kenya RO Bélarus KG Kirphizistan RU Canada KP République populaire démocratique SD de Corée SE Congo KR République de Corée SE Congo KR République de Corée SC Suisse KZ Kazakhstan SI Câte d'Ivoire LJ Liechtenstein SK Câmeroum LK Sri Lanta SN Chine LR Libéria SZ Chine LR Libéria SZ Chine LV Lesenber TD République tchèque LU Lexenbourg TG Alternagne LV Lesenbe TJ Danemark MC Monaco TT Estonie MD République de Moldova UA Espagne MG Madeguscar UG Frintande MI Mali US France

WO 96/26255 PCT/FR96/00273

# UTILISATION D'UN COMPOSE DE CERIUM POUR LA PROTECTION DES MOTEURS A COMBUSTIONINTERNE.

5

10

15

20

25

30

35

La présente invention a pour objet un procédé de protection des moteurs à combustion interne.

Elle a plus particulièrement pour objet l'application d'un additif à base de Cérium à la protection des moteurs contre l'usure et l'oxydation.

Parmi les problèmes à résoudre pour augmenter la longévité des moteurs il convient de faire une place particulière à l'arrachement progressif des matériaux constitutifs des pièces en mouvement du moteur.

En particulier, cette élimination des couches superficielles des matériaux est particulièrement aiguë pour les parties qui sont en contact avec les gaz de combustion interne avant ou après la phase de combustion.

Ces gaz sont en effet très agressifs vis-à-vis des alliages constitutifs des chambres d'explosion, ce qui conduit à utiliser des matériaux de plus en plus sophistiqués, très couteux et ce sans que cela permette de résoudre les problèmes.

Parmi les agressions que subit le moteur, on peut citer d'une part celle purement mécanique occasionnée par le frottement de deux pièces en mouvement de dureté similaire et celle liée aux variations de dimension en raison de la différence de température considérable entre un moteur au repos et un moteur en marche.

C'est pourquoi un des buts de la présente invention est de fournir des additifs qui permettent de supprimer ou de réduire l'abrasion réciproque des pièces en mouvement.

Une autre cause de dégradation des surfaces du moteur est due à l'oxydation, parfois sélective, des métaux constitutifs des alliages utilisés, c'est pourquoi un autre but de la présente invention est de fournir un additif qui permette de réduire les phénomènes d'oxydation à la surface des pièces mises en contact avec les gaz de combustion d'un combustible hydrocarboné.

Un autre but de la présente invention est de fournir un additif du type précédent qui permette d'allèger le cahier des charges pesant sur les alliages constitutifs des pièces en mouvement des moteurs.

Ces buts, et d'autres qui apparaîtront par la suite sont atteints par l'utilisation d'un additif contenant au moins un composé de Cérium pour la protection des moteurs contre l'usure et l'oxydation lequel composé est choisi de

15

25

30

35

2

manière qu'il soit soluble ou pseudo-soluble dans les hydrocarbures liquides et introduit dans le carburant alimentant le moteur à combustion interne à une concentration de manière à former une solution, un sol, une suspension ou une émulsion d'un composé du Cérium et ce à une concentration telle que le cérium soit présent dans le dit carburant à une concentration au moins égale à 5 de préférence à 10 P.P.M.(en masse).

L'expression de "pseudo-soluble" vise les suspensions ou les émulsions qui. bien que ne constituant pas des solutions au sens strict du terme, ont une stabilité dans les hydrocarbures suffisante pour que pendant l'utilisation d'un plein dans des conditions normales, aucune modification significative de l'émulsion ou de la suspension n'ait lieu.

Avantageusement, la concentration en Cérium du combustible est comprise entre 10 et 500, de préférence de 50 à 200 parties par million (en masse).

Il est envisageable d'obtenir des bonnes protections à partir de solutions de sels de cérium III à condition que ces demières soient stables dans les carburants usuels et notamment les gazoles usuels. Si l'on ne maîtrise pas la forme sous laquelle ils sont peu de temps après leur introduction dans le combustible en général le gazole, il estpréférable d'ajouter le composé du cérium 20 au dernier moment ou de manière extemporanée.

Lorsque ledit composé du cérium est choisi parmi les composés de cérium IV, il présente en outre l'avantage d'être accessible à des niveaux de forte concentration ce qui réduit la taille du réservoir, nécessaire en cas d'introduction extemporanée. Ainsi il est possible d'obtenir de concentration pouvant atteindre 15% en cérium fréquemment 20%, voire 30%.

Un autre avantage des composés tétravalents est une la stabilité supérieure à celle des trivalents.

Les bonnes protections préférées sont celles obtenues par combustion d'un combustible, ou carburant, (contenant ou non des additifs, comme le gazole) contenant au moins un composé du cérium IV (sous forme de sol ou de solution) tel que par exemple ceux décrits dans la demande de brevet européen déposée au nom de la demanderesse sous le N° 83 401 152.0.

Il a été montré au cours de l'étude qui a mené à la présente invention qu'avantageusement ledit composé du cérium IV est choisi parmi les sols.

Pour obtenir un bonne protection, on préfère brûler les sols obtenus par dilution, de préfirence extemporanée, dans un combustible, u carburant, d'un sol concentré (au moins 15 à 20% d'oxyde de cérium (CeO2)) dans une fraction

10

15

20

35

3

pétrolière telle que celle vendue sous la marque Solvesso ® 150 et stabilisé par des acides gras de C<sub>15</sub> à C<sub>25</sub> de préférence linéaires tels que les acides oléiques, linoléiques et linoléniques ou stéarique, la taille hydrodynamique des particules formant le sol étant avantageusement comprise entre 1 et 20 millimicron.

La concentration en cérium dans le combustible, et notamment le gazole, est avantageusement comprise entre 10 et 200 ppm de préférence entre 50 et 150 ppm.

Cette technique de mise en contact du Cérium avec la surface à protéger d'un alliage est transposable à d'autres applications qu'à celle des moteurs, elle permet notamment de protéger toute surface mise en contact avec une flamme formée par un hydrocarbure liquide contenant des composés du Cérium, qui eux sont solubles ou pseudo-solubles.

Lorsqu'il n'y a pas abrasion cette protection peut être acquise une fois pour toute ou être renouvelée de temps à autre.

Cette protection est particulièrement sensible et efficace lorsqu'elle est appliquée à des alliages contenant un métal trivalent soit de la famille du chrome, soit de la famille de l'aluminium, de préférence le chrome et l'aluminium.

Un autre but de la présente invention est de fournir un procédé de protection des moteurs.

Ce but est atteint par un procédé qui comporte les étapes successives ou simultanées suivantes :

-introduction dans le combustible du moteur à combustion interne d'un composé organo-soluble ou pseudo-organo-soluble du Cérium;

-conditionnement du moteur par mise en marche de ce dernier ;

-alimentation par la suite du moteur par des carburants dont la teneur en Cérium est au moins égales à 10 P.P.M.

Pour obtenir de bons résultats et que l'effet soit détectable, la durée du préconditionnement du moteur doit être telle que la quantité de Cérium réputée avoir transité dans le moteur soit au moins égale à 1 avantageusement à 10 grammes de préférence à 20 g par litre d'extindrée.

Ainsi selon la présente invention on peut moduler la durée dudit conditionnement en jouant sur la concentration du cérium dans le carburant du

PCT/FR96/00273

WO 96/26255

4

moteur à combustion interne. Toutefois il est souhaitable que la concentration en cérium n'excède pas 10 gramme par litre de préférence 1g par litre de carburant.

Si l'on désire conditionner le moteur en utilisant le carburant usuel il faut atteindre au moins une cinquantaine d'heures, de préférence une centaine d'heure mais le préconditionnemment ne constitue en fait qu'une marche normale pendant laquelle la protection du moteur par le cérium n'est que peu ou pas assurée.

L'exemple non limitatif suivant illustre l'invention.

10

5

### **EXEMPLE**

Ce test a été prévu pour évaluer les effets des propriétés du fioul et de ses additifs sur l'usure du moteur.

Les performances d'usures ont été mesurées par l'analyse des traces métalliques dans l'huile utilisée (ici le fer).

Ce test utilise un moteur diesel V6 4.3 Oldsmobile (1983) dans des conditions cycliques, pendant 130 heures.

20

On donne ci-après les paramètres critiques d'utilisation.

Cycle du Test	Tour/Minute	Température de l'Huile	Temps de l'Opération
Etape 1	1780	120°C max.	10 minutes
Etape 2	1200	120°C max.	5 minutes

25

Après chaque période de 40 heures, le moteur est arrêté pendant une période de 20 heures.

Les résultats sont tous rassemblés dans le tableau suivant :

	teneur en fer (en PPM) dans l'huile après x heure(s) de marches				
	40h	80h	120h	160h	200h
sans additif	130	220	330	380	430
avec additif	110	180	230	240	260
Δ	20*	40*	100	140	170

5

<sup>•</sup> écart non significatif

additif ajouté à raison de 100 PPM (en cérium contenu) de sol organique de diamètre hydrodynamique 10 nm (sol oléique)

30

6

### REVENDICATIONS

- Utilisation d'un additif contenant au moins un composé de Cérium pour la protection des moteurs contre l'usure et l'oxydation caractérisé par le fait que lequel composé est choisi de manière qu'il soit soluble ou pseudo-soluble dans les hydrocarbures liquides et introduit dans le carburant alimentant le moteur à combustion interne à une concentration de manière à former une solution, un sol, une suspension ou une émulsion d'un composé du Cérium et ce à une concentration telle que le cérium soit présent dans le dit carburant à une concentration au moins égale à 5 de préférence à 10 P.P.M.(en masse).
- Utilisation selon la revendication 1, caractérisée par le fait que la
   concentration en Cérium du combustible est comprise entre 10 et 500, de préférence de 50 à 200 parties par million (en masse).
- 3. Utilisation selon les revendications 1 et 2, caractérisée par le fait que ledit
   20 composé du cérium est choisi parmi les composés de cérium IV.
  - 4. Utilisation selon la revendication 3, caractérisée par le fait que ledit composé du cérium IV est choisi parmi les sols.
  - 5. Utilisation selon la revendication 4, caractérisée par le fait que les sols sont obtenus par dilution, de préférence extemporanée, dans un combustible, ou carburant, d'un sol concentré
  - 6. Procédé de protection des moteurs caractérisée par le fait qu'il comporte les étapes successives ou simultanées suivantes :
- introduction dans le combustible du moteur à combustion interne d'un composé organo-solubl ou ps udo-organo-s luble du Cérium;
  - conditionnement du moteur par mise en marche de ce dernier;

- alimentation par la suite du moteur par des carburants dont la teneur en Cérium est au moins égales à 10 P.P.M.

<del>17</del> 1 ~

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In thonal Application No PUT/FR 96/00273

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C10L10/04 C10L1/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

### **B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC  $\,6\,$  C19L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	<del></del>
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	FR,A,2 637 909 (ROUET) 20 April 1990 see the whole document	1,2,6 3-5
Y	EP,A,0 368 834 (LANG ET CO.) 16 May 1990 see the whole document	3-5
Y	DE,A,40 32 845 (LANG ET CO.) 11 July 1991 see the whole document	3-5
X	DATABASE WPI Week 9302 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 93-015390 XP002005224 & JP,A,04 345 688 (MITSUBISHI HEAVY IND. CO. LTD.)) see abstract	1,3,4,6

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or	high may throw doubts on priority claim(s) or involve an inventive step when the document is taken alone
which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the
*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	document is combined with one or more other such docu- ments, such combination being obvious to a person skilled
"P" document published prior to the international filing date but	in the art.
later than the priority date claimed	"A" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
10 June 1996	2 0 -06- 1990
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rippenk	
Tel. (~31-70) 340-2040, Tz. 31 651 epo nl., Fax: (+31-70) 340-3016	De La Morinerie, B

Form PCT/ISA/216 (second short) (July 1992)

1

Further documents are listed in the continuation of box  $\boldsymbol{\mathsf{C}}_{\star}$ 

Patent family members are listed in annex.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In thomal Application No PCT/FR 96/80273

		PCI/FR 96	700273
C1(Continua	aon) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages		Relevant to claim No.
X	FR,A,2 359 199 (GAMLEN NAINTRE S.A.) 17 February 1978	·	1,2,6
Y	see claims 1-7	!	3-5
Y	EP,A,O 599 717 (RHONE-POULENC) 1 June 1994 see page 3, line 21 - line 34		3-5
Υ	EP,A,O 206 907 (RHONE-POULENC) 30 December 1986 see page 17, line 17 - line 22; claims 1-30		3,4
X	EP,A,0 423 744 (LUBRIZOL) 24 April 1991 see abstract; claim 71		1,6 3,4
X	FR,A,1 317 440 (DIAMOND ALKALI COMP.) 6 May 1963 see page 2, column 1, paragraph 1		1,6
A	EP,A,O 426 978 (SAT CHEMIE G.M.B.H.) 15 May 1991 see abstract; figure 1		5
	·		,
			•
		ľ	
	·		·

Pg 12

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

In tronal Application No PUT/FR 96/00273

				30/002/3
Patent document cited in search report	Publication date		nt family mber(s)	Publication date
FR-A-2637909	20-04-90	NONE		<u> </u>
EP-A-368834	16-05-90	AT-B-	391873	10-12-90
DE-A-4032845	11-07-91	AT-B-	394322	10-03-92
FR-A-2359199	17-02-78	NONE		
EP-A-599717	01-06-94	FR-A- AU-B- BR-A- CA-A- CN-A- HU-A- JP-A-	2698346 5191793 9304813 2109887 1091768 69749 6340418	27-05-94 16-06-94 31-05-94 26-05-94 07-09-94 28-09-95 13-12-94
EP-A-206907	30-12-86	FR-A- AU-B- AU-B- JP-C- JP-B- JP-A-	2583761 591684 5910186 1723852 4009089 62038236	26-12-86 14-12-89 24-12-86 24-12-92 19-02-92 19-02-87
EP-A-423744	24-04-91	US-A- US-A- AT-T- AU-B- AU-B- AU-B- CA-A- DE-D- DE-T- DK-A- DK-B- EP-A- JP-B- JP-T-	4690687 4659338 118528 591394 6192986 609058 8253087 1303853 3650239 3650239 3650239 3665877 66695 170216 0233250 0579339 7088514 63500602	01-09-87 21-04-87 15-03-95 30-11-89 10-03-87 02-08-90 31-03-88 23-06-92 23-03-95 08-06-95 06-08-92 12-06-95 19-06-95 26-08-87 19-01-94 27-09-95 03-03-88

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

PCT/FR 96/00273

Patent document cited in search report	Publication date		family ber(s)	Publication date
EP-A-423744		NO-B- NO-A- WO-A- US-A-	174814 952019 8701126 4804389	05-04-94 22-05-95 26-02-87 14-02-89
FR-A-1317440	96-95-63	NONE		
EP-A-426978	15-05-91	EP-A- JP-A- JP-B- US-A-	0423417 3105111 6007010 5118282	24-04-91 01-05-91 26-01-94 02-06-92

### RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

PCT/FR 96/00273

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE CIB 6 C10L10/04 C10L1/10

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) CIB 6 C10L

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relévent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronsque consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et 12 cela est réalisable, termes de recherche utilisés)

Categorie *	Identification des documents cités, avec, le cas échèant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	FR,A,2 637 909 (ROUET) 20 Avril 1990	1,2,6
Ŷ	voir le document en entier	3-5
Y	EP,A,O 368 834 (LANG ET CO.) 16 Mai 1990 voir le document en entier	3-5
Y	DE,A,40 32 845 (LANG ET CO.) 11 Juillet 1991 voir le document en entier	3-5
X	DATABASE WP1 Week 9302 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 93-015390 XP002005224 & JP,A,04 345 688 (MITSUBISHI HEAVY IND. CO. LTD.)) voir abrégé	1,3,4,6

Your la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents	X Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe
"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorite ou cité pour déterminer la date de publication d'une suire citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)  "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens  "P" document publié avant la date de dépôt international, mais	To document ulterieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenement pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théone constituint la base de l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément.  "Y" document particulierement pertinent, l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou pluneurs autres documents de mêtire, oette combansion étant évidente pour une personne du mêter.
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée	Date d'expédition du present rapport de recherche internationale
10 Juin 1996	2 0 -06- 1996
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche international Office Européen des Brevets, P.B. 5318 Patentiaan 2 N.L 2280 HV Rijswijk Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tz. 31 651 epo nl, Fax (+ 31-70) 340-3016	De La Morinerie, B

## RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Dr vde Internationale No PUT/FR 96/00273

		PC1/FR 96/882/3
C(miss) D	OCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS	
Categorie *	Identification des documents estes, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertine	no. des revendications visèes
X	FR.A.2 359 199 (GAMLEN NAINTRE S.A.) 17 Février 1978	1,2,6
1	voir revendications 1-7	3-5
1	EP,A,O 599 717 (RHONE-POULENC) 1 Juin 1994 voir page 3, ligne 21 - ligne 34	3-5
1	EP,A,0 206 907 (RHONE-POULENC) 30 Décembre 1986 voir page 17, ligne 17 - ligne 22; revendications 1-30	3,4
( (	EP,A,O 423 744 (LUBRIZOL) 24 Avril 1991 voir abrêgé; revendication 71	1,6 3,4
(	FR,A,1 317 440 (DIAMOND ALKALI COMP.) 6 Mai 1963 voir page 2, colonne 1, alinéa 1	1,6
A	EP,A,O 426 978 (SAT CHEMIE G.M.B.H.) 15 Mai 1991 voir abrêgê; figure 1	5
	·	
		1

Fermulaire PCT/ISA/218 (suite de la descième feuille) (juillet 1992)

10-10

### RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs ..... membres de familles de brevets

Dr ade Internationale No PCT/FR 96/00273

			PCI/FR	90/002/3
Document brevet cité u rapport de recherche	Date de publication	Memt famille	ore(s) de la de brevet(s)	Date de publication
FR-A-2637909	20-04-90	AUCUN		
EP-A-368834	16-05-90	AT-B-	391873	10-12-90
DE-A-4032845	11-07-91	AT-B-	394322	10-03-92
FR-A-2359199	17-02-78	AUCUN		
EP-A-599717	01-06-94	FR-A- AU-B- BR-A- CA-A- CN-A- HU-A- JP-A-	2698346 5191793 9304813 2109887 1091768 69749 6340418	27-05-94 16-06-94 31-05-94 26-05-94 07-09-94 28-09-95 13-12-94
EP-A-206907	30-12-86	FR-A- AU-B- AU-B- JP-C- JP-B- JP-A-	2583761 591684 5910186 1723852 4009089 62038236	26-12-86 14-12-89 24-12-86 24-12-92 19-02-92 19-02-87
EP-A-423744	24-04-91	US-A- US-A- AT-T- AU-B- AU-B- CA-A- DE-T- DE-A- DK-A- DK-B- EP-A- JP-B-	4690687 4659338 118528 591394 6192986 600058 8253087 1303853 3650239 3650239 3650239 36695 170216 0233250 0579339 7088514	01-09-87 21-04-87 15-03-95 30-11-89 10-03-87 02-08-90 31-03-88 23-06-92 23-03-95 08-06-95 08-06-95 12-06-95 19-06-95 26-08-87 19-01-94 27-09-95

page 11

## RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs ..... membres de familles de brevets

Dr. rde Internationale No PCT/FR 96/09273

Document brevet cité lu rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)		Date de publication
EP-A-423744		NO-B- NO-A- WO-A- US-A-	174814 952019 8701126 4804389	05-04-94 22-05-95 26-02-87 14-02-89
FR-A-1317440	06-05-63	AUCUN	,	
EP-A-426978	15-05-91	EP-A- JP-A- JP-B- US-A-	0423417 3105111 6007010 5118282	24-04-91 01-05-91 26-01-94 02-06-92